

Modélisation micromécanique de l'effet de précipités sur le comportement d'un polycristal en alliage à mémoire de forme

CHRISTOPHE COLLARD^a, TARAK BEN ZINEB^b

a. Centre d'Elaboration de Matériaux et d'Etudes Structurales, Centre National de la Recherche Scientifique, 29 rue Jeanne Marvig, 31055 Toulouse cedex 4, France

b. Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée, Nancy Université, CNRS, 2 rue Jean Lamour, 54500 Vandoeuvre lès Nancy, France

Résumé :

Le processus d'élaboration des alliages à mémoire de forme (AMF) peut conduire à la présence de précipités au sein du matériau. On étudie ici l'effet de ces précipités sur la réponse macroscopique de ces matériaux sous différents chargements. Pour cela, on rappelle dans un premier temps les équations modélisant le comportement d'un monocristal en AMF pour un matériau pur, basées sur une approche micromécanique. Ces équations sont ensuite utilisées pour donner celles régissant le comportement d'un monocristal en AMF avec précipités, au moyen d'une transition d'échelle de type Mori-Tanaka. Enfin, le comportement pour un polycristal contenant des précipités est obtenu grâce à une transition d'échelle de type auto-cohérente.

Abstract :

The elaboration processing of Shape Memory Alloys (SMA) may induce the presence of precipitates in the material. We study here the effect of these precipitates on the macroscopic response of these materials under different loadings. To do so, we first give the equations based on a micromechanical approach, for the behavior of a pure SMA single crystal. Then we deduce the behavior of a single crystal embedding precipitates by using these equations and a Mori-Tanaka scale transition. Finally, the behavior of a SMA polycrystal embedding precipitates is obtained with a self-consistent model.

Mots clefs : alliages à mémoire de forme, précipités, micromécanique

1 Introduction

Le processus de fabrication des alliages à mémoire de forme, comme par exemple ceux de type NiTi, met en jeu des traitements thermo-mécaniques qui conduisent généralement à la formation de précipités métastables de Ni_4Ti_3 . Des études expérimentales ont montré l'influence de microstructures enrichies en nickel sur les propriétés thermiques de la transformation martensitique pour les alliages à mémoire de forme en NiTi [1]. Par ailleurs, ces précipités peuvent être volontairement introduits afin de modifier les propriétés de transformation de phase de l'AMF, telles que la taille de l'hystérésis, les températures de transformation, etc. Par exemple, la présence de précipités de Zr dans un AMF de CuZnAl décale les températures de transformation. Afin de mieux comprendre ces phénomènes, liés à la microstructure du matériau, on a développé un modèle micro-mécanique utilisant une transition d'échelle de type Mori-Tanaka pour prendre en compte l'effet des précipités à l'échelle intra-granulaire [2]. Les précipités étant dus à l'élaboration du matériau, on considère donc ceux-ci comme étant inclus dans la matrice austénitique. Les résultats obtenus dans le cas d'un chargement en compression, pour un AMF en CuZnAl, ont montré que l'ajout de précipités de zirconium augmentait l'écrouissage du matériaux et réduisait sa transformation martensitique. Nous étendons ici cette étude pour le cas de chargements en

traction, en cisaillement et en laminage. On implante ensuite une seconde transition d'échelle de type auto-cohérente afin de prendre en compte le passage de l'échelle du grain à celle du polycristal. On choisit dans cette étude un polycristal avec 100 grains d'orientations aléatoires. L'effet des précipités sur la transformation martensitique est donné pour des chargements en traction, en cisaillement et en laminage.

2 Loi de comportement de la matrice AMF

Dans ce paragraphe, on rappelle brièvement les lois de comportement d'un monocristal d'AMF pur (sans précipité). Ces équations sont utilisées pour décrire le comportement de la matrice. On se place dans une hypothèse de petites déformations. Le tenseur des déformations $\mathbf{\varepsilon}^M$ est alors donné en fonction du champ de déplacement \mathbf{u}^M par $\varepsilon_{ij}^M = \frac{1}{2} (u_{j,i}^M + u_{i,j}^M)$. De plus, on suppose qu'on peut le décomposer en une sommation de tenseurs de déformations élastique $\mathbf{\varepsilon}^e$, thermique $\mathbf{\varepsilon}^{th}$ et de transformation $\mathbf{\varepsilon}^{tr}$, liés aux différents mécanismes entrant en jeu. Le comportement général du matériau étant inélastique, on utilise une formulation en taux de déformation :

$$\dot{\varepsilon}_{ij}^M = \dot{\varepsilon}_{ij}^e + \dot{\varepsilon}_{ij}^{th} + \dot{\varepsilon}_{ij}^{tr}. \quad (1)$$

Le tenseur taux de déformations élastiques est relié au tenseur taux des contraintes $\dot{\boldsymbol{\sigma}}^M$ par la loi de Hooke $\dot{\varepsilon}_{ij}^e = S_{ijkl}^M \dot{\sigma}_{kl}^M$, où \mathbf{S} est le tenseur des souplesses. Le tenseur taux de déformation thermique est exprimé en fonction du taux de température \dot{T} et du tenseur de dilatation thermique $\boldsymbol{\alpha}^M$ par $\dot{\varepsilon}_{ij}^{th} = \alpha_{ij}^M \dot{T}$. Enfin, le tenseur taux de déformations liées à la transformation martensitique s'écrit sous la forme d'une somme pondérée qui dépend des variantes de martensite activées :

$$\dot{\varepsilon}_{ij}^{tr} = \sum_{n \text{ actives}} \varepsilon_{ij}^n \dot{f}^n, \quad (2)$$

où \dot{f}^n et $\boldsymbol{\varepsilon}^n$ sont respectivement, l'incrément de fraction volumique de martensite et le tenseur des déformations liées à la transformation de la $n^{\text{ème}}$ variante de martensite. On notera que $\boldsymbol{\varepsilon}^{tr}$ est nul lorsqu'il n'y a pas de croissance ou de décroissance de variante.

L'énergie libre de Gibbs associée s'écrit :

$$\psi(\boldsymbol{\sigma}^M, T, f^n) = \frac{1}{2} \sigma_{ij}^M S_{ijkl}^M \sigma_{kl}^M + \alpha_{ij}^M \sigma_{ij}^M \Delta T + \sigma_{ij}^M \varepsilon_{ij}^n f^n - B(T - T_0) \sum_n f^n - \sum_{n,m} \frac{1}{2} H_{nm} f^n f^m,$$

où H est la matrice d'interaction des variantes martensitiques, B est un paramètre chimique et T_0 est la température d'équilibre thermodynamique entre les phases austénitique et martensitique. La force motrice qui s'exerce sur chaque variante est déduite à partir de l'énergie de Gibbs par :

$$F^n = \frac{\partial \psi}{\partial f^n} = \sigma_{ij}^M \varepsilon_{ij}^n - B(T - T_0) - \sum_m H_{nm} f^m,$$

où les \mathbf{e}^n sont des vecteurs unitaires orthonormaux. L'équation de cohérence est donnée pour une force critique constante sur chaque variante f^n par :

$$\dot{F}^n = \varepsilon_{ij}^n \dot{\sigma}_{ij}^M - B \dot{T} - \sum_m H_{nm} \dot{f}^m = 0. \quad (3)$$

Lorsque plusieurs variantes s'activent, la matrice H n'est en général pas inversible. On ne peut donc pas déduire directement la valeur de f^n à partir de cette équation. Pour obtenir cette valeur, on part de la loi de Hooke dans laquelle on utilise la relation (1), puis on remplace les tenseurs $\boldsymbol{\varepsilon}^{th}$ et $\boldsymbol{\varepsilon}^{tr}$ par leurs expressions :

$$\dot{\sigma}_{ij}^M = C_{ijkl}^M \dot{\varepsilon}_{kl}^e = C_{ijkl}^M \left[\dot{\varepsilon}_{kl}^M - \dot{\varepsilon}_{kl}^{th} - \dot{\varepsilon}_{kl}^{tr} \right] = C_{ijkl}^M \left[\dot{\varepsilon}_{kl}^M - \alpha_{kl}^M \dot{T} - \varepsilon_{kl}^m \dot{f}^m \right], \quad (4)$$

où $\mathbf{C}^M = [\mathbf{S}^M]^{-1}$. En utilisant l'équation (4) dans (3) on obtient finalement

$$\dot{\mathbf{f}}^n = \sum_m \hat{H}_{nm}^{-1} \left[\varepsilon_{ij}^m C_{ijkl}^M \dot{\varepsilon}_{kl}^M - (\varepsilon_{ij}^m C_{ijkl}^M \alpha_{kl}^M + B e^m) \dot{T} \right], \quad (5)$$

où la matrice $\hat{H}_{nm} = H_{nm} + \varepsilon_{pq}^n C_{pqrs}^M \varepsilon_{rs}^m$ est symétrique définie positive, et est par conséquent inversible. La taille de cette matrice est liée au nombre de variantes actives. Si on a k variantes actives, H est de taille $k \times k$. Pour obtenir la loi de comportement de l'AMF, on remplace l'expression de $\dot{\mathbf{f}}$ donnée par (5) dans l'équation (4), d'où on déduit :

$$\dot{\sigma}_{ij}^M = l_{ijkl} \dot{\varepsilon}_{kl}^M - m_{ij} \dot{T} \quad (6)$$

avec

$$\begin{cases} l_{ijkl} = C_{ijkl}^M - \sum_{n,m} C_{ijrs}^M \varepsilon_{rs}^n \hat{H}_{nm}^{-1} \varepsilon_{pq}^m C_{pqkl}^M, \\ m_{ij} = C_{ijkl}^M \alpha_{kl}^M - \sum_{n,m} C_{ijrs}^M \varepsilon_{rs}^n \hat{H}_{nm}^{-1} (B e^m + \varepsilon_{pq}^m C_{klpq}^M \alpha_{kl}^M). \end{cases}$$

3 Loi de comportement d'un monocristal en AMF avec précipités

On considère des précipités sphériques inclus dans une matrice en AMF. La fraction de précipités est notée ρ^I . Le taux de déformation totale dans les inclusions $\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^I$ est décomposé en une partie élastique $\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^{e,I}$ et une partie thermique $\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^{th,I}$ sous la forme $\dot{\varepsilon}_{ij}^I = \dot{\varepsilon}_{ij}^{e,I} + \dot{\varepsilon}_{ij}^{th,I}$. Le taux de déformation totale peut alors être déduit de la loi des mélanges :

$$\dot{\varepsilon}_{ij} = (1 - \rho^I) \dot{\varepsilon}_{ij}^M + \rho^I \dot{\varepsilon}_{ij}^I. \quad (7)$$

La loi utilisée ici pour décrire le comportement des inclusions est purement élastique. La loi de Hooke relie donc le taux de contraintes $\dot{\boldsymbol{\sigma}}^I$ dans les inclusions au tenseur taux des déformations via le tenseur d'élasticité \mathbf{C}^I et le tenseur des dilations thermiques $\boldsymbol{\alpha}^I$. La loi de comportement de la matrice est donnée par l'équation (6). La température est considérée comme homogène dans tout le matériau. On obtient ainsi :

$$\begin{cases} \dot{\sigma}_{ij}^M = l_{ijkl} \dot{\varepsilon}_{kl}^M - m_{ij} \dot{T}, \\ \dot{\sigma}_{ij}^I = C_{ijkl}^I \dot{\varepsilon}_{kl}^I - C_{ijkl}^I \alpha_{kl}^I \dot{T}. \end{cases} \quad (8)$$

On considère que les précipités inclus dans la matrice sont identiques. On utilise un modèle d'homogénéisation de Mori-Tanaka [3] pour déduire le comportement d'un monocristal matrice-inclusions. L'hypothèse de Mori-Tanaka est que lorsque plusieurs particules identiques sont introduites dans un matériau, la déformation moyenne dans les inclusions est reliée à de la déformation moyenne dans la matrice par le tenseur de localisation des déformations d'Eshelby \mathbf{A}^{Esh} [4] : $\boldsymbol{\varepsilon}^I = \mathbf{A}^{\text{Esh}} \boldsymbol{\varepsilon}^M$. Tucker et Liang ont montré [5] qu'il était possible de réécrire l'hypothèse de Mori-Tanaka en définissant un module \mathbf{A}^{MT} reliant la déformation moyenne dans les inclusions à la déformation moyenne appliquée

$$\boldsymbol{\varepsilon}^I = \mathbf{A}^{\text{MT}} \boldsymbol{\varepsilon}. \quad (9)$$

Ce tenseur des concentrations \mathbf{A}^{MT} , défini par

$$\mathbf{A}^{\text{MT}} = \mathbf{A}^{\text{esh}} \left[(1 - \rho^I) \mathbf{I} + \rho^I \mathbf{A}^{\text{esh}} \right]^{-1},$$

est relié au tenseur d'Eshelby qui est exprimé en fonction du tenseur de Green modifié $\mathbf{T}^{II}(\mathbf{l})$ par

$$\mathbf{A}^{\text{esh}} = [\mathbf{I} - \mathbf{T}^{II}(\mathbf{l})(\mathbf{l} - \mathbf{C}^I)]^{-1}.$$

On peut alors exprimer le taux de déformation dans la matrice en fonction du taux de déformation total en introduisant l'équation (9) dans la loi des mélanges (7). On obtient alors :

$$\dot{\varepsilon}_{ij}^M = \frac{1}{1 - \rho^I} [l_{ijkl} - \rho^I A_{ijkl}^{\text{MT}}] \dot{\varepsilon}_{kl}. \quad (10)$$

Les tenseurs des taux de contraintes dans la matrice et dans chaque inclusion peuvent maintenant être exprimés en fonction du taux de la déformation moyenne dans le composite matrice-inclusion, en utilisant les équations (9) et (10) dans l'équation (8) :

$$\begin{cases} \dot{\sigma}_{ij}^M = \frac{1}{1-\rho^I} l_{ijkl} [I_{klpq} - \rho^I A_{klpq}^{MT}] \dot{\epsilon}_{pq} - m_{ij} \dot{T}, \\ \dot{\sigma}_{ij}^I = C_{ijkl}^I A_{klpq}^{MT} \dot{\epsilon}_{pq} - C_{ijkl}^I \alpha_{kl}^I \dot{T}. \end{cases}$$

On déduit ainsi la loi de comportement du composite en introduisant ces équations dans la loi des mélanges sur les taux de contraintes $\dot{\sigma}_{ij} = (1-\rho^I) \dot{\sigma}_{ij}^M + \rho^I \dot{\sigma}_{ij}^I$. On peut l'écrire sous la forme :

$$\dot{\sigma}_{ij} = k_{ijkl} \dot{\epsilon}_{pq} - p_{ij} \dot{T}, \quad (11)$$

où les modules thermo-mécaniques \mathbf{k} et \mathbf{p} sont définis par :

$$\begin{cases} k_{ijkl} = l_{ijkl} + \rho^I (C_{ijpq}^I - l_{ijpq}) A_{pqkl}^{MT}, \\ p_{ij} = m_{ij} + \rho^I (C_{ijkl}^I \alpha_{kl}^I - m_{ij}). \end{cases}$$

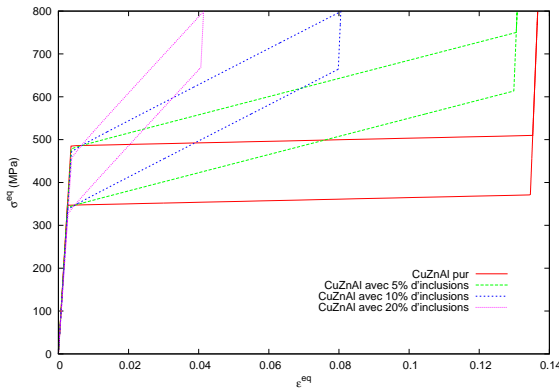


FIGURE 1 – Simulation d'un essai de traction. Effet de la présence de précipités élastiques de Zr sur un monocristal de CuZnAl.

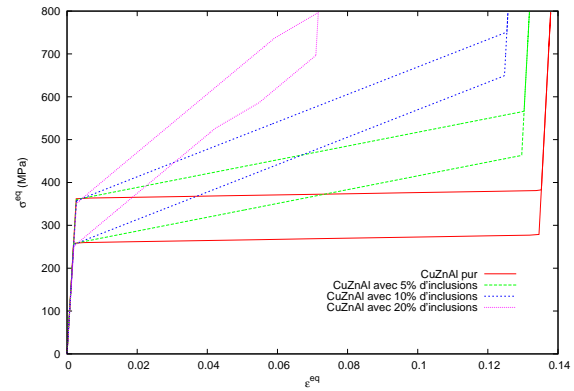


FIGURE 2 – Simulation d'un essai de cisaillement. Effet de la présence de précipités élastiques de Zr sur un monocristal de CuZnAl.

Ces équations sont implantées dans le code de calcul Simula+ [9]. On simule le comportement d'un AMF de CuZnAl pur pour des chargements en traction, en cisaillement et en laminage. Son tenseur d'élasticité est isotrope, de constante de cisaillement 46000 MPa et de coefficient de Poisson 0.3. Ensuite, on ajoute des précipités de Zr modélisés par des inclusions sphériques, avec un comportement élastique. Leur tenseur d'élasticité est cubique, de module de Young de 68000 MPa, de constante de cisaillement de 33000 Mpa et de coefficient de Poisson de 0.34. Par ailleurs, on suppose que l'ensemble des précipités est orienté dans la même direction (0, 0, 0). Pour le CuZnAl, on choisit l'orientation cristallographique (216.61, 74.02, 148.48). Sa température de début de transformation est $M_s = -50^\circ C$ et celle de fin de transformation inverse est $A_f = -30^\circ C$. Les essais sont réalisés à température ambiante de $20^\circ C$.

On obtient un écrouissage du matériau d'autant plus important que la quantité de précipités est grande. Par ailleurs, les températures M_s et A_f varient en fonction de la quantité de précipités. La taille de l'hystérésis et la déformation maximale diminuent lorsque la quantité de précipités augmente. Dans le cas d'un chargement en traction (Fig. 1), on active qu'une seule variante. L'ajout de précipités ne modifie pas l'activation de variantes sur la zone étudiée (0 - 800 MPa). Par contre, un chargement en cisaillement (Fig. 2) va activer une seule variante (différente de celle activée en traction) pour un AMF pur, mais pour un taux de précipités atteignant les 20%, une seconde variante (mineure) est activée. Pour le chargement en laminage (Fig. 3), la même variante que celle en traction s'active pour un matériau pur. Par contre, dès 5% d'ajout de précipités, on déclenche l'activation d'une variante mineure. L'activation d'une nouvelle variante est matérialisée par le changement de la pente de la courbe contrainte-déformation.

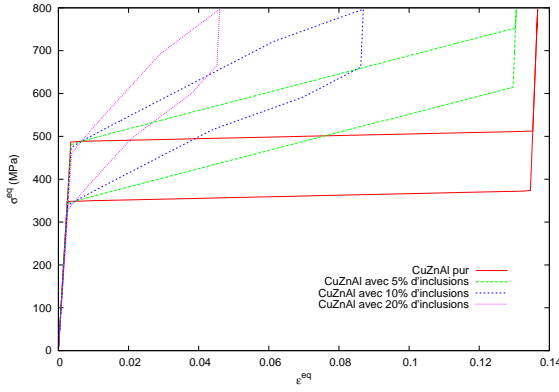


FIGURE 3 – Simulation d'un essai de laminage. Effet de la présence de précipités élastiques de Zr sur un monocristal de CuZnAl.

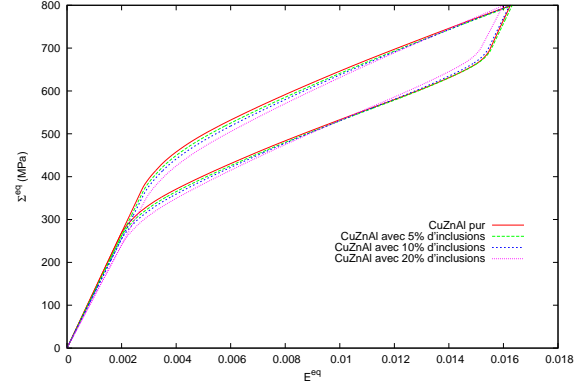


FIGURE 4 – Simulation d'un essai de traction. Effet de la présence de précipités élastiques de Zr sur un polycristal de CuZnAl.

4 Loi de comportement d'un polycristal en AMF avec précipités

On considère un polycristal constitué de N grains contenant des précipités élastiques, tels que décrits précédemment. Afin de déterminer son comportement macroscopique, à partir des informations obtenues à l'échelle microscopique, on utilise une transition d'échelle de type auto-cohérente [6]. On note \mathbf{A}^I et \mathbf{a}^I les tenseurs de localisation. Ces tenseurs permettent d'exprimer le tenseur des taux de déformations moyennes sur le grain en fonction du taux de la déformation macroscopique $\dot{\mathbf{E}}$:

$$\dot{\mathcal{E}}_{ij} = A_{ijkl} \dot{E}_{kl} + a_{ij} \dot{T}.$$

Le tenseur du taux de contraintes moyennes dans chaque grain peut alors être calculé grâce à l'éq. (11) :

$$\dot{\sigma}_{ij} = k_{ijkl} \dot{\mathcal{E}}_{kl} - p_{ij} \dot{T},$$

ce qui permet d'obtenir le tenseur du taux de contraintes macroscopiques $\dot{\Sigma}$ au moyen d'une sommation sur le polycristal :

$$\dot{\Sigma}_{ij} = \frac{1}{V} \int_V \dot{\sigma}_{ij}(r) dr = L_{ijkl}^{\text{eff}} \dot{E}_{kl} - M_{ij}^{\text{eff}} \dot{T},$$

où les modules effectifs \mathbf{L}^{eff} et \mathbf{M}^{eff} sont définis par :

$$\begin{cases} L_{ijkl}^{\text{eff}} = \frac{1}{V} \int_V k_{ijpq}(r) A_{pqkl}(r) dr, \\ M_{ij}^{\text{eff}} = \frac{1}{V} \int_V [p_{ij}(r) - k_{ijkl}(r) a_{kl}(r)] dr. \end{cases}$$

Afin de calculer les tenseurs de localisation \mathbf{A} et \mathbf{a} , on considère un milieu homogène de référence ayant pour modules thermo-mécaniques \mathbf{L}^0 et \mathbf{M}^0 , soumis à un champ de déformations uniforme \mathbf{E}^0 . On exprime les modules locaux comme étant fonction des modules du milieu effectif plus une fluctuation $k_{ijkl} = L_{ijkl}^0 + \delta k_{ijkl}$ et $p_{ij} = M_{ij}^0 + \delta p_{ij}$. En utilisant ces équations dans (11) et en faisant l'hypothèse que la température est uniforme dans tout le matériau on obtient $\mathbf{L}^0 = \mathbf{L}^{\text{eff}}$ et $\mathbf{M}^0 = \mathbf{M}^{\text{eff}}$ (cf [7]) d'où :

$$\mathbf{A}^I = [\mathbf{I} - \mathbf{T}^{II}(\mathbf{L}^{\text{eff}})\delta\mathbf{k}^I]^{-1} \quad \text{et} \quad \mathbf{a}^I = -\mathbf{A}\mathbf{T}^{II}(\mathbf{L}^{\text{eff}})\delta\mathbf{p}^I.$$

Ces équations sont maintenant implantées dans Simula+. On considère un matériau de CuZnAl constitué de 100 grains avec des orientations cristallographiques aléatoires, contenant des précipités de Zr ayant tous une orientation cristallographique (0,0,0). L'ajout de précipités dans l'AMF adoucit le comportement du matériau en début de transformation, car la matrice est plus dure que les inclusions. En phase de transformation martensitique, l'écrouissage du matériau est d'autant plus important que

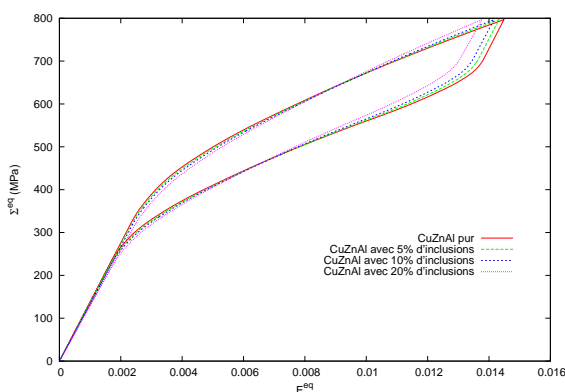


FIGURE 5 – Simulation d'un essai de cisaillement. Effet de la présence de précipités élastiques de Zr sur un polycristal de CuZnAl.

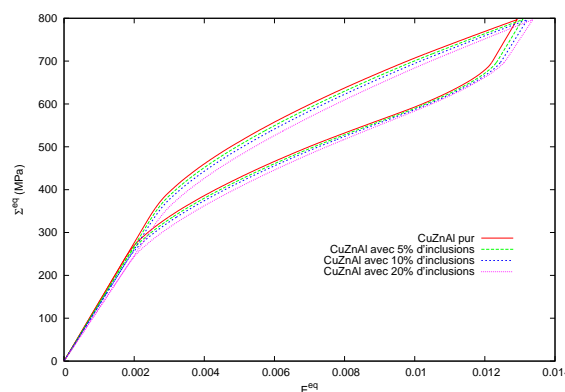


FIGURE 6 – Simulation d'un essai de laminage. Effet de la présence de précipités élastiques de Zr sur un polycristal de CuZnAl.

la quantité de précipités est importante. En conséquence, à partir d'un certain point le matériaux qui était plus élastique devient plus dur. L'effet est plus ou moins rapide selon que l'on applique un chargement en traction uniaxiale (Fig. 4), en cisaillement (Fig. 5), ou en laminage (Fig. 6). Dans ce dernier cas, le matériau obtenu est alors plus ductile car on n'atteint pas ce point. Pour l'ensemble de ces chargements, on observe une diminution des températures de transformation M_s et A_f .

5 Conclusions

La présence de précipités au sein d'un AMF, même en faible quantité, change ses propriétés. La réponse macroscopique du matériau est également modifiée et est fortement liée au type de chargement appliqué. Plusieurs études restent encore à mener, comme par exemple l'effet de l'orientation cristallographique du monocristal et des précipités, celui de la plasticité dans les précipités, celui de la dureté des impuretés par rapport à celle de la matrice AMF. On peut également introduire le code développé pour effectuer des simulations dans un logiciel d'éléments finis afin de prendre en compte la localisation de la déformation dans le cas d'une structure complexe de type multicristal [8].

Références

- [1] T. Saburi, 1998, Shape memory materials. *Cambridge University Press*, 49-96.
- [2] C. Collard, T. Ben Zineb, E. Patoor, M.O. Ben Salah, 2008, Micromechanical analysis of precipitates effects on shape memory alloys behaviour. *Material Science and Engineering A*, **481-482**, 366-370.
- [3] T. Mori, K. Tanaka, 1973, Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions. *Acta Metall.*, **21**, 571-574.
- [4] J.D. Eshelby, 1961, Elastic inclusions and inhomogeneities. *Progress in Solid Mechanics*, North Holland, **2**, 89-140.
- [5] C.L. Tucker III, E. Liang, 1999, Stiffness predictions for unidirectional short-fiber composites : Review and evaluation. *Composites Sci. Tech.*, **59**, 655-671.
- [6] E. Patoor, A. Eberhardt, M. Berveiller, 1989, Thermomechanical behaviour of shape memory alloys. *Arch. Mech.*, **40**, 755-794.
- [7] N. Siredey, E. Patoor, M. Berveiller, A. Eberhardt, 1999, *Int. J. Solids Struct.*, **36**, 4289-4315.
- [8] T. Merzouki, C. Collard, N. Bourgeois, T. Ben Zineb, F. Meraghni, 2010, Coupling between measured kinematic fields and multicrystal SMA finite element calculations. *Mechanics of Materials*, **42**, 72-95.
- [9] Simula+ is a scientific code developed at LEM3, LEMTA and CEMES. Web site : [http ://www.lpmm.fr/collard/simula+.html](http://www.lpmm.fr/collard/simula+.html)